

DIALOG(R)File 352:Derwent WPI

(c) 2004 Thomson Derwent. All rts. reserv.

013448852 **Image available**

WPI Acc No: 2000-620795/200060

XRAM Acc No: C00-186078

Organic electroluminescent element used as display element, has electrodes containing hole injection property CuPc organic film of specific thickness formed by ion plating method, containing electron accepting gas

Patent Assignee: FUTABA DENSHI KOGYO KK (FUTK)

Number of Countries: 001 Number of Patents: 001

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
JP 2000164355	A	20000616	JP 98335895	A	19981126	200060 B

Priority Applications (No Type Date): JP 98335895 A 19981126

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan	Pg	Main IPC	Filing Notes
JP 2000164355	A		11	H05B-033/10	

Abstract (Basic): JP 2000164355 A

NOVELTY - The electroluminescent element (1) consists of a transparent electrically conductive film (3) laminated between a pair of electrodes (4,6). One or more electrodes contain hole injection property CuPc organic film (5a) containing an electron accepting gas. The film has thickness of 1000 nm or more and is formed by ion plating method.

DETAILED DESCRIPTION - An INDEPENDENT CLAIM is also included for the manufacture of the organic electroluminescent element.

USE - For use as display element.

ADVANTAGE - Electrical conductivity of CuPc organic film and hole injection efficiency are enhanced. Driving circuit is obtained economically. Power consumption is reduced. Variation in the gas molecule concentration along CuPc film thickness direction is eliminated.

DESCRIPTION OF DRAWING(S) - The figure shows the partial sectional view of the organic electroluminescent element.

Electroluminescent element (1)

Conductive film (3)

Electrodes (4,6)

Organic film (5a)

pp; 11 DwgNo 1/9

Title Terms: ORGANIC; ELECTROLUMINESCENT; ELEMENT; DISPLAY; ELEMENT;
ELECTRODE; CONTAIN; HOLE; INJECTION; PROPERTIES; ORGANIC; FILM; SPECIFIC;
THICK; FORMING; ION; PLATE; METHOD; CONTAIN; ELECTRON; ACCEPT; GAS

Derwent Class: E12; E23; L03

International Patent Class (Main): H05B-033/10

International Patent Class (Additional): C23C-014/12; C23C-014/32;

H05B-033/14; H05B-033/22

File Segment: CPI

?

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-164355

(P 2 0 0 0 - 1 6 4 3 5 5 A)

(43) 公開日 平成12年6月16日(2000.6.16)

(51) Int. Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード (参考)
H05B 33/10		H05B 33/10	3K007
C23C 14/12		C23C 14/12	4K029
14/32		14/32	Z
H05B 33/14		H05B 33/14	A
33/22		33/22	C
審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全11頁)			

(21) 出願番号 特願平10-335895

(22) 出願日 平成10年11月26日(1998.11.26)

(71) 出願人 000201814

双葉電子工業株式会社

千葉県茂原市大芝629

(72) 発明者 小川 行雄

千葉県茂原市大芝629 双葉電子工業株式
会社内

(72) 発明者 飯泉 安広

千葉県茂原市大芝629 双葉電子工業株式
会社内

(74) 代理人 100067323

弁理士 西村 教光 (外1名)

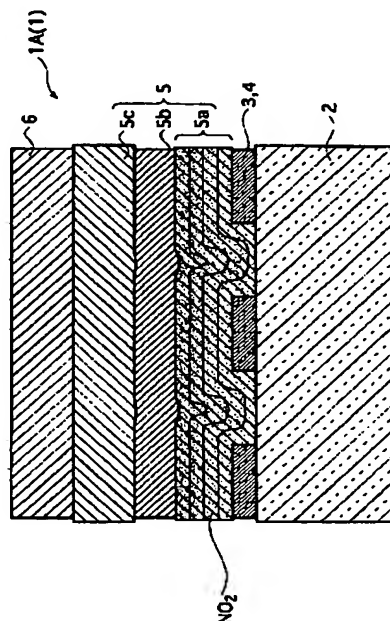
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機EL素子とその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 CuPc有機膜の膜厚を厚くしても、低消費電力化を図ってより低い電圧での駆動を可能とし、CuPc有機膜の可視光赤色部の透過率を向上させて所望の発光色を得る。

【解決手段】 ガラス基板2の上には、透明導電膜3による所定パターン形状の陽極4が成膜される。陽極4の上には、ホール注入性のCuPc有機膜5aが1 μ m以上の膜厚でイオンプレーティング法により赤色発光の透過率が向上したプラズマ重合膜として成膜される。このCuPc有機膜5aは、成膜後に電子受容性のガスであるNO₂の雰囲気中に晒され、膜中にNO₂を含有している。これにより、CuPc有機膜5aの導電率が上昇し、ホール注入効率が安定して向上する。CuPc有機膜5aの上には α -NPD有機膜5b、Alq₃有機膜5cの順に成膜されて有機層5が形成され、Alq₃有機膜5cの上には陰極6が成膜される。ガラス基板2の外周部分には、陽極4、有機層5及び陰極6を保護するように容器部7が固着される。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも一方の電極が透明導電膜でなる一対の電極間にホール注入性のCuPc有機膜を含む有機層が積層された有機EL素子において、

前記CuPc有機膜が、1000nm以上の膜厚でイオンプレーティング法により形成した電子受容性のガスを含有する膜からなることを特徴とする有機EL素子。

【請求項2】 前記電子受容性のガスがNO₂からなる請求項1記載の有機EL素子。

【請求項3】 少なくとも一方の電極が透明導電膜でなる一対の電極間にホール注入性のCuPc有機膜を含む有機層が積層された有機EL素子の製造方法において、前記CuPc有機膜をイオンプレーティング法により膜厚1000nm以上で成膜し、前記CuPc有機膜が成膜された後に、該CuPc有機膜の表面を電子受容性のガスでリンス処理する工程を含むことを特徴とする有機EL素子の製造方法。

【請求項4】 少なくとも一方の電極が透明導電膜でなる一対の電極間にホール注入性のCuPc有機膜を含む有機層が積層された有機EL素子の製造方法において、前記CuPc有機膜を複数の層に分けてイオンプレーティング法により膜厚1000nm以上で成膜する工程と、前記CuPc有機膜の各層を成膜する毎に電子受容性のガスで表面をリンス処理する工程とを含むことを特徴とする有機EL素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、電子とホール（正孔）の注入・再結合により発光する有機化合物材料のエレクトロルミネッセンス（以下ELという）を利用して、前記有機EL化合物の薄膜から構成された有機EL素子とその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 有機EL素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜を陰極と陽極との間に挟んだ積層構造を有し、前記薄膜に電子及びホールを注入して再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、この励起子が失活する際の光の放出（蛍光・燐光）を利用して表示を行う表示素子である。

【0003】 図9（a）～（g）はこの種の従来の有機EL素子の構成及び製造工程を示す側断面図である。

【0004】 この有機EL素子31は、図9（a）に示す絶縁性及び透明性を有するガラス基板32の上にITO（Indium Tin Oxide）からなる透明導電膜33が形成されている。この透明導電膜33はガラス基板32上に成膜され、図9（b）に示すような所定パターン形状にパターンニングされて陽極34を形成している。

【0005】 陽極34の上には有機化合物材料の薄膜による有機層35が積層されている。有機層35は、図9

（c）に示す陽極34の上に成膜されたホール注入層としての銅フタロシアニン（CuPc）有機膜35aと、図9（d）に示すCuPc有機膜35aの上に成膜されたホール輸送層としてのα-NPD（Bis（1-naphthyl）-N-phenyl）benzidine）有機膜35bと、図9（e）に示すα-NPD有機膜35bの上に成膜された発光層兼電子輸送層としてのトリス（8-キノリノラト）アルミニウム（Alq₃）有機膜35cとの3層構造で形成されている。

【0006】 図9（f）に示すように、有機層35（Alq₃、有機膜35c）の上には、例えばAl-Li等の金属薄膜からなる陰極36が形成されている。

【0007】 図9（g）に示すように、ガラス基板32の外周部分には、水分を極力取り除いた不活性ガス（例えばドライ窒素）やドライエアによるドライ雰囲気において、封着部材としての容器部37が接着剤により固着されている。

【0008】 上記のように構成される有機EL素子31では、陽極34と陰極36との間に電圧を印加して定電流を流す。これにより、有機層35に対し、陽極34からホールが、陰極36から電子がそれぞれ注入される。そして、注入された電子とホールが再結合して励起子を生成し、この励起子が失活する際の光の放出により所望の表示がなされる。その際の発光は、透明導電膜33による陽極34を介してガラス基板32側から観測される。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】 ところで、上記のように構成される有機EL素子31では、有機層35のホール注入層としてCuPc有機膜35aを有している。このCuPc有機膜35aは、その膜厚に応じて電圧-電流特性及び電圧-輝度特性が異なる特性を有している。すなわち、一定電流又は一定輝度で発光させる場合、CuPc有機膜の膜厚が薄くなるに連れて駆動電圧を低くでき、逆にCuPc有機膜が厚くなるに連れて駆動電圧が高くなる特性を示している。

【0010】 図6及び図7には、図9の有機EL素子の構成を採用し、CuPc有機膜の膜厚を20nmと1000nmで成膜した場合のそれぞれの特性が示されている。この図からも明らかなように、CuPc有機膜の膜厚を20nmで成膜した場合の方が1000nmで成膜した場合よりも駆動電圧を低くできることが判る。

【0011】 具体的に、電流で見た場合、有機EL素子を駆動するのに必要な15mA/cm²の電流を流すには、図6に示すように、CuPc有機膜の膜厚が20nmで約5.8V程度の駆動電圧を必要とするのに対し、1000nmでは15mA/cm²はとれず素子として実用化できなかった。

【0012】 また、輝度で見た場合、一般に表示素子として必要とする400cd/m²の輝度を得るには、図

7に示すように、CuPc有機膜の膜厚が20nmで約6.2V程度の駆動電圧を必要とするのに対し、1000nmでは400cd/m²を得ることは不可能であった。

【0013】したがって、図9の構成による有機EL素子31でより高輝度を得るためには、CuPc有機膜の膜厚を20nmと薄くしなければならなかった。

【0014】ところで、特開昭59-194393号公報(特公平6-32307号)には、有機層として正孔インジェクション帯域と有機発光帯域とを厚さが1000nmを越えないように陽極と陰極との間に挟んで積層した構造による有機エレクトロルミネッセント装置が開示されている。

【0015】しかしながら、上記装置においても、上述したCuPc有機膜による問題を含め、以下に示すような問題がある。すなわち、有機層の下地になる陽極をITOで形成した場合、その表面がスパイク状の突起を含む数十nmの凹凸面となってしまう。また、ITOの下地になるガラス基板の表面も緩やかではあるが凹凸面となっている。

【0016】そして、凹凸面を有するガラス基板の上にITOを成膜して陽極を形成し、更に凹凸面を有するITOの上に有機層をなす正孔インジェクション帯域及び有機発光帯域、陰極を順に積層して成膜すると、ITOのスパイク状の突起により陽極と陰極との間が電氣的にショートして絶縁不良を招くおそれがあった。

【0017】また、蒸着する場所や周囲の微細なゴミ等が既に形成されている陽極の表面に付着した場合、そのまま陽極の上に有機層、陰極を順に成膜すると、ゴミ等による隙間を完全に埋めることができない。このため、その隙間を介して陽極と陰極との間の電氣的なショートを引き起し易い。しかも、陽極に付着したゴミが導電性を有している場合には、このゴミを介して陽極と陰極との間を電氣的にショートさせる可能性が高い。

【0018】したがって、上記問題を解消するためには、有機層の膜厚をある程度厚くすることにより、ゴミ等に対する許容を広くし、有機層の下地になる電極の表面を平滑化させる必要があった。

【0019】ところが、上述したように、特に有機層として透明導電膜の上に成膜されるCuPc有機膜を厚くすると、電圧-電流特性及び電圧-輝度特性が高電圧側にシフトする。その結果、CuPc有機膜の膜厚を厚くする前のものと同じ輝度で発光させるためには、より高い駆動電圧を必要とし、電力の消費量が増すという問題を招く。

【0020】更に、分子線蒸着で成膜したCuPc有機膜は、緑から赤色領域に吸収帯を有しており、発光層の発光に赤色成分が多く含まれる場合には発光の多くがCuPc有機膜で吸収されてしまうので、十分な赤色発光の輝度が得られない。

【0021】したがって、有機層にCuPc有機膜が含まれた構成では、CuPc有機膜の膜厚が厚くなるほどCuPc有機膜における赤色や緑色の成分の光が通りにくくなる。その結果、緑色より長波長の成分の輝度が低下し、白色の発光を得ようとした場合でも青色になってしまい、所望の発光色を得ることができない。

【0022】ところで、有機層の一部を構成するCuPc膜はp形伝導を示すが、このCuPc膜に例えばNO₂等の電子受容性(酸化性)の強いガスが吸着すると、ガス分子がCuPc膜の環状原子団のπ電子を受け取り、膜中に正孔を発生させて膜の導電率が上昇する性質を有していることが知られている。

【0023】そこで、本発明は、上述したCuPc膜の性質を利用し、CuPc有機膜の膜厚を厚くしても、低消費電力化を図ってより低い電圧での駆動可能であり、CuPc有機膜の可視光赤色部の透過率を向上させて所望の発光色を得ることができる有機EL素子とその製造方法を提供することを目的としている。

【0024】

20 【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、請求項1の発明は、少なくとも一方の電極が透明導電膜でなる一対の電極間にホール注入性のCuPc有機膜を含む有機層が積層された有機EL素子において、前記CuPc有機膜が、1000nm以上の膜厚でイオンプレーティング法により形成した電子受容性のガスを含む膜からなることを特徴とする。

【0025】請求項2の発明は、請求項1の有機EL素子において、前記電子受容性のガスがNO₂からなることを特徴とする。

30 【0026】請求項3の発明は、少なくとも一方の電極が透明導電膜でなる一対の電極間にホール注入性のCuPc有機膜を含む有機層が積層された有機EL素子の製造方法において、前記CuPc有機膜をイオンプレーティング法により膜厚1000nm以上で成膜し、前記CuPc有機膜が成膜された後に、該CuPc有機膜の表面を電子受容性のガスでリンス処理する工程を含むことを特徴とする。

40 【0027】請求項4の発明は、少なくとも一方の電極が透明導電膜でなる一対の電極間にホール注入性のCuPc有機膜を含む有機層が積層された有機EL素子の製造方法において、前記CuPc有機膜を複数の層に分けてイオンプレーティング法により膜厚1000nm以上で成膜する工程と、前記CuPc有機膜の各層を成膜する毎に電子受容性のガスで表面をリンス処理する工程とを含むことを特徴とする。

【0028】

50 【発明の実施の形態】図1は本発明による有機EL素子の第1実施の形態を示す部分拡大側断面図、図2(a)～(i)は図1の有機EL素子の製造工程を示す側断面図である。

【0029】図1に示すように、第1実施の形態による有機EL素子1A(1)は、絶縁性及び透明性を有する矩形状のガラス基板2を基部としている。ガラス基板2の上には、ITO等の透明導電膜3が成膜されている。透明導電膜3は、例えば真空蒸着法、スパッタ法等のPVD(Physical Vapor Deposition)法により100nm前後の膜厚で成膜される。透明導電膜3は、更にフォトリソパターンによるエッチングで所定パターン形状にパターンニングされ、陽極4を形成している。陽極4の一部は、ガラス基板2の端部まで引き出されて不図示の駆動回路(ドライバIC)に接続される。

【0030】陽極4の上には、有機化合物材料の薄膜による発光層を含む有機層5が積層されている。有機層5は、例えば分子線蒸着法、抵抗加熱法等のPVD法により成膜される。

【0031】図1における有機層5は、陽極4の上に1000nm以上の膜厚で成膜されたホール注入性有機膜としてのCuPc有機膜5aと、CuPc有機膜5aの上に数10nmの膜厚で成膜されたホール輸送性有機膜としての α -NPD有機膜5bと、 α -NPD有機膜5bの上に数10nmの膜厚で成膜された発光層兼電子輸送性有機膜としてのAlq₃有機膜5cとの3層構造で形成されている。

【0032】有機層5の上には、金属薄膜による陰極6が形成されている。陰極6は、例えばAl、Li、Mg、Ag、In等の仕事関数の小さい金属材料単体やAl-Li、Mg-Ag等の仕事関数の小さい合金からなる。陰極6は、例えば分子線蒸着法、抵抗加熱法等のPVD法により例えば数10nm～数100nm(好ましくは50nm～200nm)の膜厚で成膜される。陰極6の一部は、ガラス基板2の端部まで引き出されて不図示の駆動回路に接続される。

【0033】ガラス基板2の外周部分には、水分を極力取り除いた不活性ガス(例えばドライ窒素)やドライエアによるドライ雰囲気において、封着部材としての蓋状の容器部7が接着剤(例えば紫外線硬化接着剤)により固着されている。これにより、両電極4、6及び有機層5を保護するとともに、高精細な有機ELデバイスを実現している。

【0034】上記のように構成される有機EL素子1Aでは、陽極4と陰極6との間に不図示の駆動回路から駆動電圧を印加して定電流を流す。これにより、有機層5に対し、陽極4からホールが、陰極6から電子がそれぞれ注入される。そして、注入されたホールと電子が有機層5で再結合して励起子を生成し、この励起子が失活する際の光の放出により所望の表示がなされる。その際の発光は、透明導電膜による陽極4を介してガラス基板2の外側から観測される。

【0035】次に、上記構成による有機EL素子1Aの製造方法を図2(a)～(i)に基づいて説明する。ま

ず、内部圧力が 10^{-4} Pa以下に設定された不図示のチャンバー内にガラス基板2をセットし、ガラス基板2の表面に透明導電膜3を150nm程度の膜厚で成膜する(図2(a))。続いて、透明導電膜3にフォトリソパターンによるエッチングを施して所定パターン形状の陽極4を形成する(図2(b))。この透明導電膜3は通常のスパッタ法で成膜できるが、スパッタ法による成膜では透明導電膜3がポリリ化して結晶粒界に起因したフレーク状の凹凸が表面に形成されてしまうので、非結晶質で成膜されるのが好ましい。例えば、IDIXO(商品名:出光透明導電材料Idemitsu Indium X-Metal Oxide、出光興産株式会社製)の非晶質透明導電膜で透明導電膜3を成膜すれば、緻密で表面平滑性に優れた膜を形成することができる。

【0036】なお、非晶質による透明導電膜(IDIXOによる透明導電膜等)3の成膜時に、所望のパターンニングをするためにマスク蒸着をしてもよい。また、場合によっては、透明導電膜3の成膜後に、通常のリソグラフィ法を用いて透明導電膜3をパターン加工してもよい。

【0037】透明導電膜3による陽極4が形成された後、陽極4の上にCuPc有機膜5aを1000nm以上の膜厚で成膜する(図2(c))。例えば1000nmの膜厚のCuPc有機膜5aを成膜する場合には、分子線蒸着法、抵抗加熱法等のPVD法により、1回当たり100nmの膜厚で10回に分けて成膜される。

【0038】上記CuPc有機膜5aの成膜には、図3に示すイオンプレーティング装置が用いられる。イオンプレーティング装置11は、図示しない排気手段を用いて内部を所望の真空雰囲気にする真空槽12を有している。真空槽12の上部には基板ホルダー13が設けられている。基板ホルダー13は、CuPc有機膜5aを堆積させるためのガラス基板2を着脱可能に保持する。この基板ホルダー13には基板バイアス電源14が接続され、後述するプラズマを加速してガラス基板2に引き寄せることができるように構成されている。真空槽12の下部には、加熱手段15が設置されている。WやMo等からなるポート16内に蒸着源17を入れ、この加熱手段15上に載置して加熱すれば、蒸着源17は熱により蒸発する。真空槽12内の加熱手段15の上方側部には、コイル電極18が配置されている。コイル電極18には整合回路19を介してRF電源20が接続されており、近傍の分子にエネルギーを与えてプラズマを発生させることができる。真空槽12にはガス導入弁21を介してガス導入管22が接続されており、内部に所望の雰囲気ガスを所望の量だけ導入できるようになっている。

【0039】前記イオンプレーティング装置11を用いてガラス基板2の透明導電膜3の上にCuPc有機膜5aを形成する。まず、真空槽12中の加熱手段15に、WやMoのポート16を設置する。このポート16内に

10

20

30

40

50

CuPcを入れる。真空槽12中を 10^{-6} Torr以下の真空度になるように排気する。次に、加熱手段15に通電してポート16を400~500℃程度の温度に加熱し、CuPcを蒸発させる。この時、ガス導入弁21を操作して真空槽12中にAr等のガスを導入して真空度を 10^{-1} ~ 10^{-4} Torr以上にし、コイル電極18に高周波電力を印加してプラズマを発生させる。基板ホルダー13に500V以下の加速電圧を印加すると、プラズマ化したCuPcが基板ホルダー13に取り付けたガラス基板2に向けて移動し、ガラス基板2の透明導電膜3の上に堆積してプラズマ重合膜としてのCuPc有機膜5aを生成する。

【0040】上記のようにしてCuPc有機膜5aが成膜されると、CuPc有機膜5aの第1ガスリンス処理として、ガラス基板2がセットされたチャンバー内に N_2 ガスを導入してエージングする(図2(d))。具体的に、この第1ガスリンス処理では、 N_2 ガスを例えば100ml/mnの流量でチャンバー内圧力が10~100Paになるまで導入し、5分間放置する。この第1ガスリンス処理で電子受容性の強い NO_2 ガスを導入しないのは、いきなり NO_2 ガスをチャンバー内に導入すると、チャンバー内の残留ガスと反応して爆発等を起こすおそれがあるためである。

【0041】上記第1ガスリンス処理に引き続いて、CuPc膜5aの第2ガスリンス処理として、チャンバー内に NO_2 ガスを導入して N_2 ガスを NO_2 ガスに置換する(図2(e))。具体的に、この第2ガスリンス処理では、 NO_2 ガスを例えば100ml/mnの流量でチャンバー内圧力が10~100Paになるまで導入し、10分間放置する。これにより、チャンバー内の NO_2 ガスを成膜直後に大気に曝さない状態でCuPc有機膜5aに接触させる。そして、CuPc有機膜5aの表面に NO_2 ガスを十分吸着させ、膜中に NO_2 ガスを浸透させる。

【0042】上記第2ガスリンス処理を終えると、再度チャンバー内を真空排気し、チャンバー内圧力を 10^{-6} Pa以下にした状態で、CuPc有機膜5aの上に α -NPD有機膜5bを分子線蒸着法、抵抗加熱法等のPVD法により成膜する(図2(f))。続いて、 α -NPD有機膜5bの上にAlq₃有機膜5cを成膜し(図2(g))、更にAlq₃有機膜5cの上に陰極6となる金属薄膜(例えばAl-Li膜)をPVD法により成膜する(図2(h))。

【0043】その後、水分を極力取り除いた不活性ガス(例えばドライ窒素)やドライエアによる雰囲気において、ガラス基板2の外周部分に封着部材としての容器部7を紫外線硬化接着剤により固着する(図2(i))。これにより、内部の陽極4、有機層5及び陰極6が保護され、有機EL素子1Aが完成する。

【0044】次に、図4は本発明による有機EL素子の

第2実施の形態を示す図、図5(a)~(j)は図4の有機EL素子の製造工程を示す図である。なお、第1実施の形態と同一の構成要素には同一番号を付し、その説明を省略する。

【0045】第2実施の形態の有機EL素子1Bは、陽極4の上に成膜されるCuPc有機膜5aが分子線蒸着法、抵抗加熱法等のPVD法により、複数層に分けて成膜され、各層が成膜される毎に各層の表面に NO_2 ガスを十分吸着させる構成となっている。その他の構成については、第1実施の形態の有機EL素子1Aと同一である。

【0046】上記有機EL素子1Bを製造するにあたって、CuPc有機膜5aの1層目を成膜するまでの工程は上述した第1実施の形態の有機EL素子1Aを製造する場合と同一工程で行われる(図5(a)~(c))。

【0047】前述したイオンプレーティング法により陽極4の上にCuPc有機膜5aの1層目が成膜されると、第1ガスリンス処理として、ガラス基板2がセットされたチャンバー内に N_2 ガスを導入してエージングする(図5(d))。具体的に、この第1ガスリンス処理では、 N_2 ガスを例えば100ml/mnの流量でチャンバー内圧力が10~100Paになるまで導入し、5分間放置する。

【0048】上記第1ガスリンス処理に引き続いて、第2ガスリンス処理として、チャンバー内に NO_2 ガスを導入して N_2 ガスを NO_2 ガスに置換する(図5(e))。具体的に、この第2ガスリンス処理では、 NO_2 ガスを例えば100ml/mnの流量でチャンバー内圧力が10~100Paになるまで導入し、10分間放置する。これにより、チャンバー内の NO_2 ガスを成膜直後に大気に曝さない状態でCuPc有機膜5aの1層目に接触させる。そして、CuPc有機膜5aの表面に NO_2 ガスを十分吸着させ、膜中に NO_2 ガスを浸透させる。

【0049】上記第2ガスリンス処理を終えると、イオンプレーティング法によりCuPc有機膜5aの2層目を1層目の上に成膜する。このCuPc有機膜5aの2層目以降について、所望とする膜厚(1000nm以上)でCuPc有機膜5aが成膜されるまでは、各層が成膜される毎に上記第2ガスリンス処理が行われる(図5(f))。

【0050】すなわち、所望とするCuPc有機膜5aの膜厚をM(nm)(但し、 $M>0$ nm)、1回当たりに成膜される膜厚をH(nm)とすると、その成膜回数をNは、 $H \cdot N \geq M$ の関係を満足するように成膜される。具体的に、所望とするCuPc有機膜の膜厚が1000nmで、1回当たりに成膜される膜厚が100nmであれば、CuPc有機膜は10回に分けて成膜される。そして、この10回の成膜を終える毎に上記第2ガスリンス処理が行われる。

【0051】 所望とする膜厚のCuPc有機膜5aが成膜され、各層毎に上記第2ガスリンス処理を終えると、再度チャンバー内を真空排気し、チャンバー内圧力を 10^{-5} Pa以下にした状態で、CuPc有機膜5aの上に α -NPD有機膜5bを分子線蒸着法、抵抗加熱法等のPVD法により成膜する(図5(g))。続いて、 α -NPD有機膜5bの上にAlq₃有機膜5cを成膜し(図5(h))、更にAlq₃有機膜5cの上に陰極6となる金属薄膜(例えばAl-Li膜)をPVD法により成膜する(図5(i))。

【0052】 その後、水分を極力取り除いた不活性ガス(例えばドライ窒素)やドライエアによる雰囲気において、ガラス基板2の外周部分に封着部材としての容器部7を紫外線硬化接着剤により固着する(図5(j))。これにより、内部の陽極4、有機層5及び陰極6が保護され、有機EL素子1Bが完成する。

【0053】 このように、上記各実施の形態の有機EL素子1(1A, 1B)によれば、有機層5の一部を構成するCuPc有機膜5aが電子受容性(酸化性)の強いガスとしてNO₂を含有しているため、CuPc有機膜5aの導電率が上昇し、ホール注入効率を安定して向上させることができる。これにより、電圧-電流特性における電流の閾値を低電圧側にシフトすることができる。その結果、有機EL素子1をダイナミック駆動するときにおいても、所望の輝度を得るための電圧を低電圧に設定することが可能となり、駆動回路(ドライバーIC)のコストダウンを図ることができる。しかも、有機EL素子1を低電圧で駆動できることから、点灯中の寿命特性も改善することができる。

【0054】 ここで、CuPc有機膜の膜厚を1000 nmとしたときの本実施の形態(第2実施の形態)の有機EL素子と従来の有機EL素子における電圧-電流特性と電圧-輝度特性を図6及び図7に示す。

【0055】 図6及び図7に基づいて本実施の形態の有機EL素子と従来の有機EL素子の各特性について比較すると、まず、有機EL素子に15 mA/cm²の電流を流す場合、図6に示すように、CuPc有機膜の膜厚が1000 nmの本実施の形態の有機EL素子1Bでは、その駆動電圧が約8.5 Vとなる。

【0056】 これに対し、CuPc有機膜の膜厚が1000 nmの従来の有機EL素子では、図6からも明らかなように、上記実施の形態の有機EL素子よりも更に高い駆動電圧を必要とする。

【0057】 また、400 cd/m²の輝度を得る場合には、図7に示すように、CuPc有機膜の膜厚が1000 nmの本実施の形態の有機EL素子では、その駆動電圧が約9 Vの駆動電圧となる。

【0058】 これに対し、CuPc有機膜の膜厚が1000 nmの従来の有機EL素子では、図7からも明らかなように、上記実施の形態の有機EL素子よりも更に高

い駆動電圧を必要とする。

【0059】 このように、CuPc有機膜の膜厚を1000 nmとし、同一電流又は同一輝度で比較した場合、本実施の形態の有機EL素子によれば、図6の電圧-電流特性及び図7の電圧-輝度特性を従来の有機EL素子よりも低電圧側にシフトできることが判る。

【0060】 したがって、CuPc膜の膜厚を同一厚さとした場合、各実施の形態の有機EL素子1A, 1Bによれば、従来の有機EL素子より低い電圧で駆動することができ、消費電力の低減を図ることができる。

【0061】 図8は本実施の形態の有機EL素子のCuPc有機膜と従来の有機EL素子のCuPc有機膜における波長と透過率の関係を示す図である。図8において、実線は本実施の形態に係るイオンブレーティング法により1000 nmの膜厚でCuPc有機膜を成膜した透過率曲線であり、破線は従来の分子線蒸着法、抵抗加熱法等のPVD法により1000 nmの膜厚でCuPc有機膜を成膜したときの透過率曲線である。

【0062】 この図8を見ても明らかなように、赤色領域において、本実施の形態のCuPc有機膜では透過率のピークが0.95を示すのに対し、従来のCuPc有機膜では透過率のピークが0.05を示している。このことから、本実施の形態のイオンブレーティング法により成膜したCuPc有機膜5aにおいては、赤色領域での透過率が従来に比べて大幅に向上している。これは、プラズマ重合によって結晶状態が変わり、近接するCuPc分子間の相互作用が減少したため、顔料としての隠蔽力が低下したためと考えられる。また、高周波電力を印加して行うインブレーティング法によれば、堆積したプラズマ重合膜の表面の凹凸は小さくなって平滑になり、このため発光に寄与しない無効電流が少なくなる。

【0063】 このように、本実施の形態では、上述したガスリンス処理に加え、CuPc有機膜5aがイオンブレーティング法により形成した透過率の高いプラズマ重合層なので、赤色発光が吸収されにくくなり、赤色発光の透過率を向上させて所望の発光色を得ることができる。また、成膜されたCuPc有機膜5aの表面は、通常の蒸着膜よりも平滑になるので、発光に寄与しない無効電流を減少させることができる。

【0064】 第2実施の形態の有機EL素子1Bによれば、CuPc有機膜5aが各層毎にNO₂ガスを吸着した多層構造となっているため、CuPc膜5aの上層と下層におけるガス分子の濃度が均一となり、CuPc膜5aの膜厚方向のNO₂ガス分子濃度(図1及び図4におけるCuPc有機膜5aの点の分布)の傾斜、すなわちガス分子濃度のバラツキを無くすることができる。

【0065】 なお、上記実施の形態において、CuPc有機膜5aの下地が透明導電膜の場合、CuPc有機膜5aの膜厚を薄くすると、透明導電膜3の凹凸面による影響を受けるため、透明導電膜3の平滑化処理が必要と

なる。この平滑化処理としては、ITO等の透明導電膜3の成膜後に表面を研磨して平滑化するか、IDIXO等の非晶質で透明導電膜3を成膜することが考えられる。

【0066】ところで、上述した各実施の形態の製造方法では、 N_2 ガスの第1ガスリンス処理と NO_2 ガスの第2ガスリンス処理とを別々の工程で行うものとして説明したが、例えば $N_2 : NO_2 = 98 : 2$ の比率による混合ガスを用いてガスリンス処理を行ってもよい。これにより、上記CuPc膜5aの N_2 ガスの第1ガスリンス処理と NO_2 ガスの第2ガスリンス処理を分けずに1つの工程で実現することができる。

【0067】各実施の形態における有機層5は、図示の3層構造に限定されるものではなく、ホール注入性有機膜としてのCuPc有機膜5a及び発光層を含む構造であればよい。

【0068】各実施の形態において、透明導電膜3からなる陽極4と金属薄膜からなる陰極6を逆転させた構成としてもよい。この場合、有機層5を構成するCuPc有機膜5a、 α -NPD有機膜5b、Alq₃有機膜5cも逆転して積層される。その際、使用されるガラス基板2が必ずしも透明性を有する必要がなく、絶縁性を有する有色の基板を用いることができる。

【0069】また、一对の電極（陽極4、陰極6）は、少なくとも一方が透明性を有する導電材料で形成されていればよい。その際、両方の電極が透明性を有する導電材料の場合には、一方の電極（陽極4）に仕事関数の大きい透明性を有する導電材料（ITO）を使用し、他方の電極（陰極6）に仕事関数の小さい透明性を有する導電材料を使用する。

【0070】

【発明の効果】以上の説明で明らかなように、本発明の有機EL素子によれば、有機層の一部を構成するCuPc有機膜が電子受容性のガス（ NO_2 ）を含有しているので、CuPc有機膜の導電率が上昇し、ホール注入効率を安定して向上させることができる。

【0071】これにより、電圧-電流特性における電流の閾値を低電圧側にシフトすることができる。その結果、有機EL素子をダイナミック駆動するときにおいても、所望の輝度を得るための電圧を低電圧に設定することが可能となり、駆動回路のコストダウンを図ることができる。しかも、有機EL素子を低電圧で駆動できるこ

とから、点灯中の寿命特性も改善することができる。加えて、CuPc有機膜は、イオンプレーティング法により形成した透過率の高いプラズマ重合層なので、赤色発光が吸収されにくくなり、赤色発光の透過率を向上させて所望の発光色を得ることができる。また、イオンプレーティング法により形成されたCuPc有機膜の表面は、通常の蒸着膜よりも平滑になるので、発光に寄与しない無効電流を減少させることができる。

【0072】特に、CuPc有機膜を複数層に分けて成膜し、各層を成膜する毎に電子受容性のガス（ NO_2 ）で表面をリンス処理することにより、CuPc膜の上層と下層におけるガス分子の濃度が均一となり、CuPc膜の膜厚方向のガス分子濃度のバラツキを無くすることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明による有機EL素子の第1実施の形態を示す部分側断面図

【図2】（a）～（i）第1実施の形態の有機EL素子の製造工程を示す側断面図

20 【図3】本発明の有機EL素子のCuPc有機膜の成膜に使用されるイオンプレーティング装置の構造を模式的に示す図

【図4】本発明による有機EL素子の第2実施の形態を示す部分側断面図

【図5】（a）～（j）第2実施の形態の有機EL素子の製造工程を示す側断面図

【図6】CuPc有機膜の膜厚に応じた本実施の形態の有機EL素子と従来の有機EL素子の電圧-電流特性を示す図

30 【図7】CuPc有機膜の膜厚に応じた本実施の形態の有機EL素子と従来の有機EL素子の電圧-輝度特性を示す図

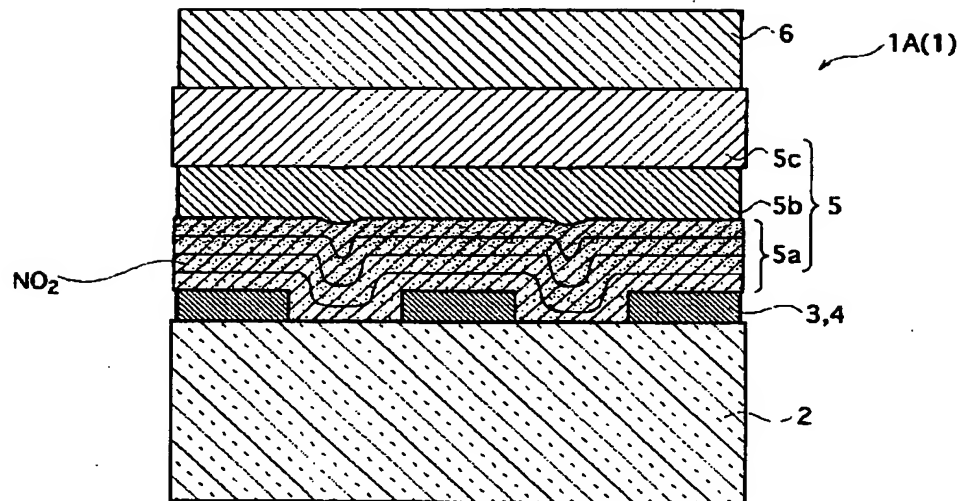
【図8】本実施の形態の有機EL素子のCuPc有機膜と従来の有機EL素子のCuPc有機膜における波長と透過率の関係を示す図

【図9】（a）～（g）従来の有機EL素子の構成及び製造工程を示す側断面図

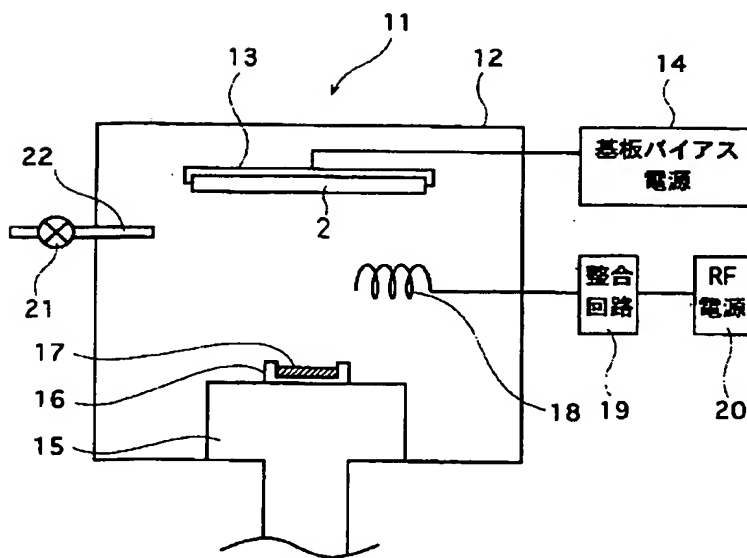
【符号の説明】

1（1A、1B）…有機EL素子、3…透明導電膜、4…陽極、5…有機層、5a…CuPc有機膜、6…陰極、11…イオンプレーティング装置。

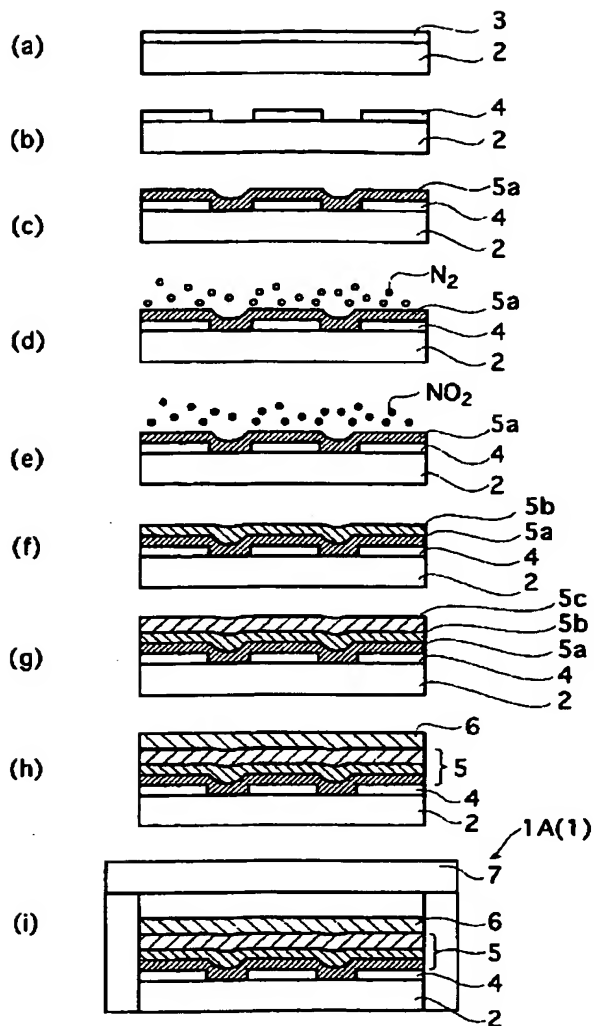
【図1】



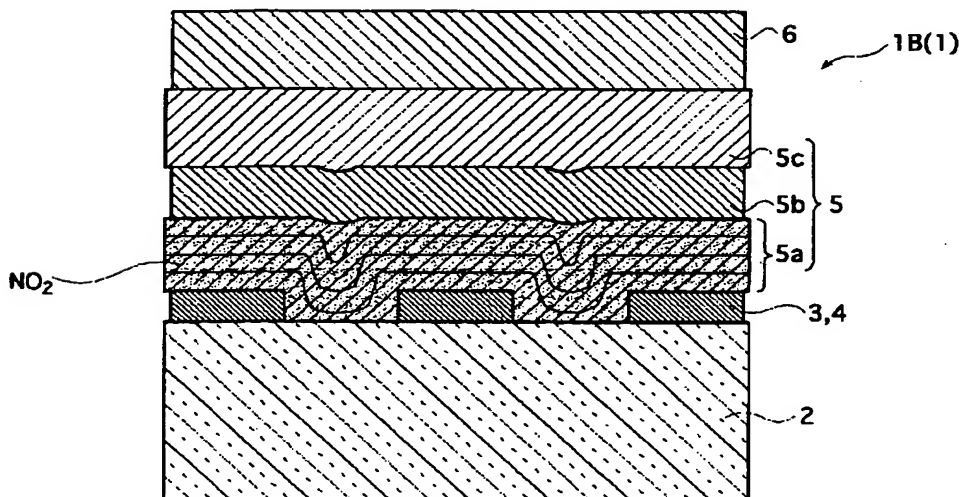
【図3】



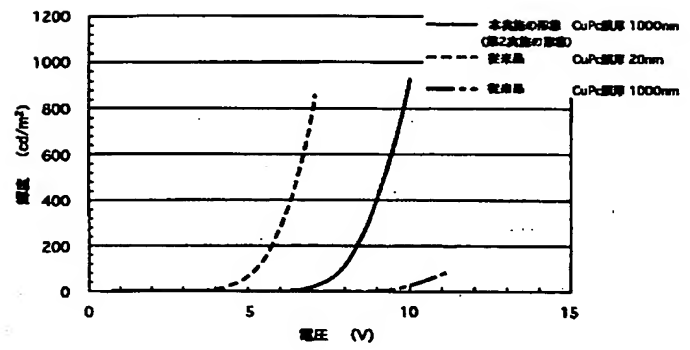
【図2】



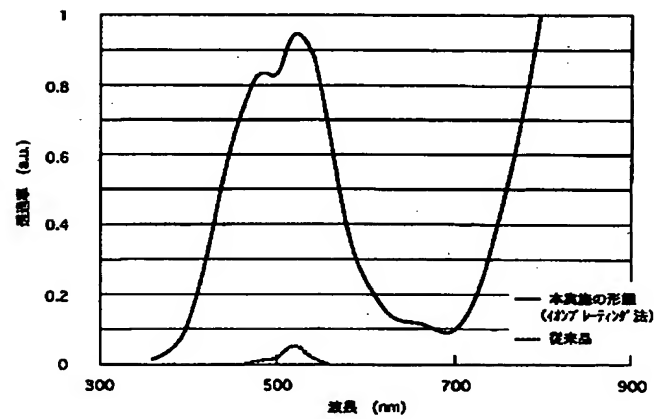
【図4】



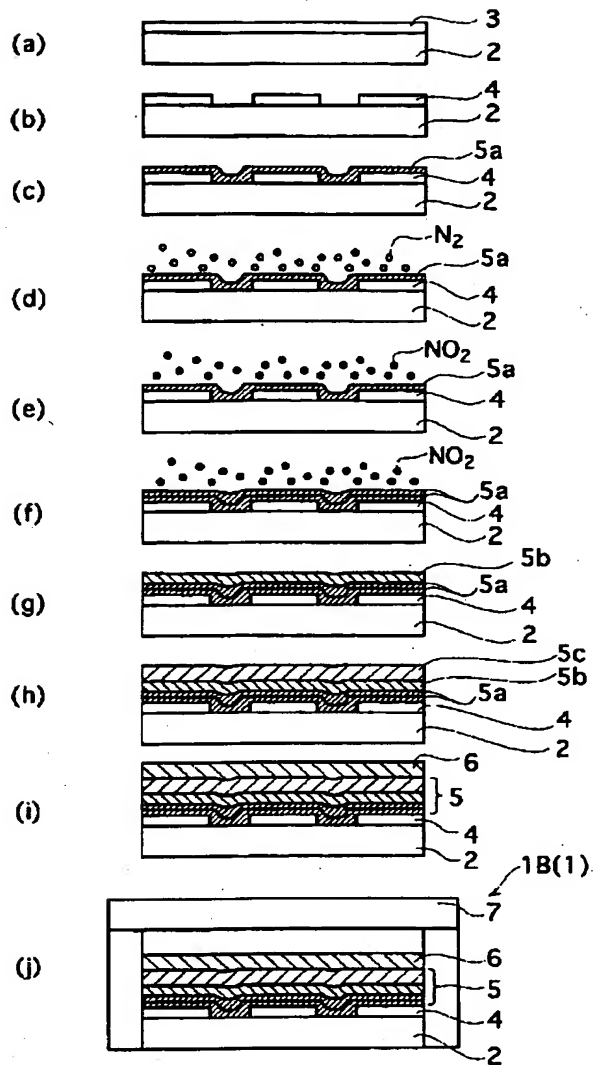
【図7】



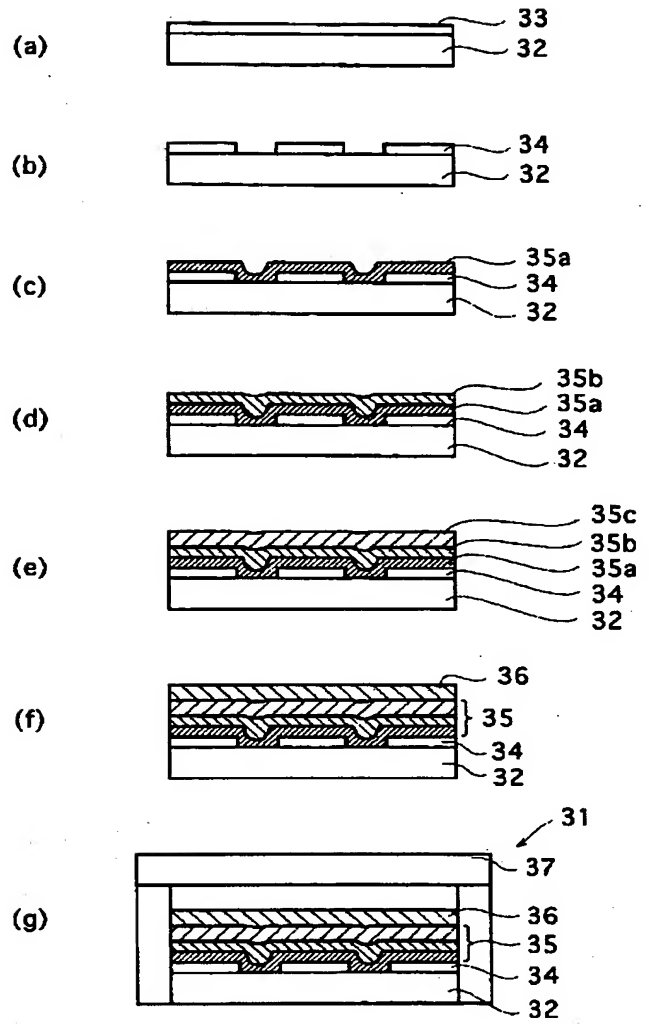
【図8】



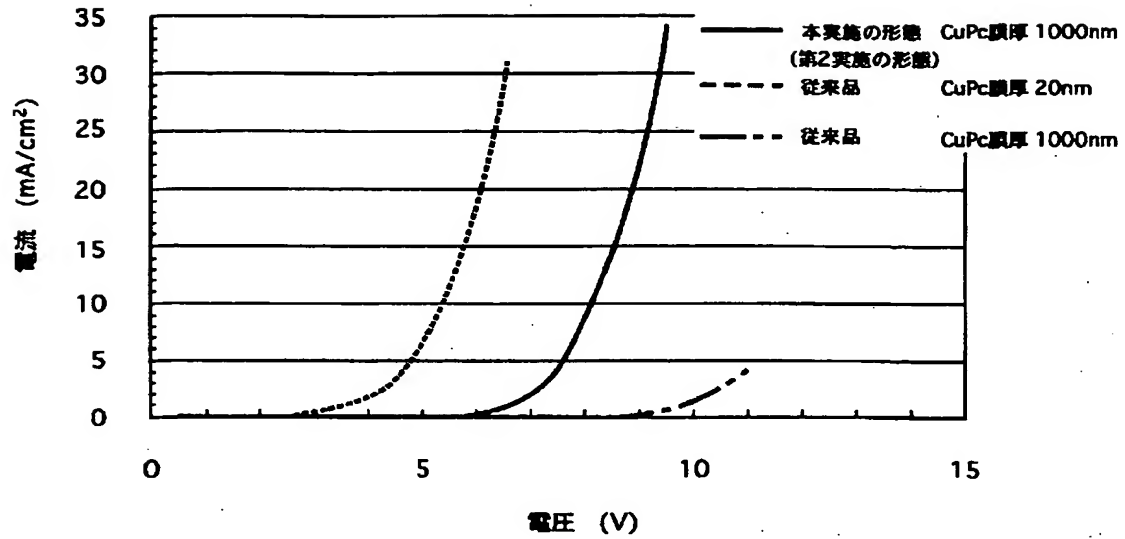
【図 5】



【図 9】



【図6】



フロントページの続き

(72)発明者 高橋 尚光
千葉県茂原市大芝629 双葉電子工業株式
会社内
(72)発明者 福田 辰男
千葉県茂原市大芝629 双葉電子工業株式
会社内

Fターム(参考) 3K007 AB04 AB06 AB08 AB18 BA06
BB01 CA01 CB01 DA01 DB03
EB00 FA01
4K029 AA09 BA08 BA62 BB02 BC09
BD00 CA03 DD02 EA01